Sn-Ag-Cu 钎料焊接显微组织演化和性能研究

孙 磊[1] 陈明和[1] 张 亮[2] 杨 帆[2]

1 南京航空航天大学机电学院 南京 210016
2 江苏师范大学机电工程学院 徐州 221116

摘 要 利用 DSC、微焊点强度测试仪、SEM、EDS 及 XRD，研究了 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 钎料的熔化特性、润湿性、力学性能、显微组织及相种类。通过 TL-1000 型高低温循环试验箱测试了-55~125 ℃ 循环条件下 Sn-Ag-Cu 焊点的界面层变化。结果表明，随着 Ag 含量的增加，钎料的熔点变化不大，钎料的润湿角显著降低，N_2 氛围条件下，3 种钎料的润湿性均出现明显的提高。此外，3 种焊点的力学性能也随着 Ag 含量的增加显著提高。Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 焊点的基体组织存在着少量的 Ag_3Sn 和大颗粒 Cu_6Sn_5 化合物，且分布杂乱，Sn3.0Ag0.5Cu 焊点的基体组织则相对较为均匀，这也是 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 焊点的力学性能低于 Sn3.0Ag0.5Cu 的主要原因。对焊点进行热循环处理，发现 3 种焊点界面金属间化合物的厚度明显增加，界面层的形貌也由原来扇贝状向层状转化。

关键词 Sn-Ag-Cu，润湿性，力学性能，显微组织，热循环

中图分类号 TG454 **文章编号** 0412-1961(2017)00-0000-00

Microstructures Evolution and Properties of Sn-Ag-Cu Solders

SUN Lei [1], CHEN Minghe [1], ZHANG Liang [2], YANG Fan [2]

1 College of Mechanical & Electrical Engineering, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China

2 School of Mechanical and Electrical Engineering, Jiangsu Normal University, Xuzhou 221116, China

Correspondent：CHEN Minghe, professor, Tel: (025)84892508, E-mail: meemhchen@nuaa.edu.cn

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.51475220), Six Talent Peaks project in Jiangsu Province (No.XCL022), Qing Lan project, State Key Laboratory of Advanced Brazing Filler Metals & Technology (No.SKLABFMT201503) and China Postdoctoral Science Foundation funded project (No.2016M591464)

Manuscript received 2016-07-25，in revised form 2017-01-05

ABSTRACT SnAgCu solder alloys, such as Sn3.0Ag0.5Cu, Sn3.8Ag0.7Cu and Sn3.9Ag0.6Cu, are widely used for consumer electronics due to their good wettability, high mechanical properties and excellent thermal fatigue reliability. However, the high Ag content in SnAgCu solder, which can bring about a relatively high cost and poor drop impact reliability because of the thicker brittle Ag_3Sn compound formed during soldering. Therefore, the development of low Ag content SnAgCu solders to satisfy the requirements of electronic production has become a hot topic in this field. In this work, the effects of Sn0.3Ag0.7Cu, Sn1.0Ag0.5Cu and Sn3.0Ag0.5Cu solder on the melting character, wettability, mechanical properties and microstructures, phase composition were investigated by DSC, micro-joint strength tester, SEM, EDS and XRD. Under -55~125 ˚C cyclic conditions, the interfacial layer

资助项目 国家自然科学基金项目 No.51475220，江苏省“六大人才高峰”高层次人才项目 No.XCL022，江苏省“青蓝工程”中青年学术带头人计划，新型钎焊材料与技术国家重点实验室开放课题项目 No.SKLABFMT201503，以及中国博士后科学基金项目 No.2016M591464

收稿日期 2016-07-25 **定稿日期** 2017-01-05

作者简介 孙 磊，男，1989 年生，博士生

通讯作者 陈明和，meemhchen@nuaa.edu.cn，主要从事钎焊技术、材料超塑性及成形/扩散连接技术的研究

DOI 10.11900/0412.1961.2016.00332

change of Sn-Ag-Cu solder joints was measured by TL-1000 high and low temperature test chamber. The results showed that, with the Ag content increased, the melting point was not changed, the wetting angle significantly decreased. And the wettability of three solders was improved under N_2 atmosphere. Moreover, the mechanical properties of three solder joints were enhanced with the increase of Ag content. The matrix structure of Sn0.3Ag0.7Cu and Sn1.0Ag0.5Cu solder joint have a small amount of Ag_3Sn and large Cu_6Sn_5 particles, and the distribution of particles were disordered. However, the matrix structure of Sn3.0Ag0.5Cu solder joint was obviously uniform. This is the reason that the mechanical properties of Sn0.3Ag0.7Cu and Sn1.0Ag0.5Cu solder joints were lower than that of Sn3.0Ag0.5Cu. In addition, the solder joints were subjected to a thermal cycling reliability test, it was found that the thickness of intermetallic compounds (IMCs) increased, and the morphology of IMCs was gradually changed from scallop-like to planar-like.

KEY WORDS Sn-Ag-Cu, wettability, mechanical property, microstructure, thermal cycling

传统的 Sn37Pb 钎料由于熔点适宜(183 ˚C)、价格低廉以及优越的可焊性，一直是电子封装中使用最普遍的钎焊材料，对于它的制备工艺以及焊点可靠性等问题，业界已积累了丰富的经验[1]。然而，随着人们环保意识的逐渐增强，Pb 及其化合物对人体和环境的危害备受关注。因此，世界各国纷纷通过立法限制和禁止 Pb 的使用，研究无铅钎料成为当前的热点之一[2~4]。经过十几年的不断探索，对于无铅钎料的研究取得了丰富的成果。目前主要的无铅钎料有 SnAg 系、SnCu 系、SnZn 系、SnBi 系以及 SnAgCu 系[5]。其中，高银系(Ag≥3.0%，质量分数)SnAgCu 钎料由于优越的综合性能被推荐为 SnPb 钎料的最佳替代品[6~8]。近几年，围绕增强高银系 SnAgCu 钎料性能的研究成果占据了无铅钎料总成果一半以上。但是，随着研究的不断深入，高银系钎料在后期的服役过程中易出现粗大的板条状 Ag_3Sn 化合物，导致焊点的抗冲击及抗跌落性能显著降低。同时，较高的 Ag 含量必然增加钎料的成本，导致市场竞争力下降[9,10]。因此，为了适应市场需要，降低 Ag 含量成为当前国内外研究的热点。目前，在低银系无铅钎料中，Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 钎料由于具有明显的成本优势逐渐受到业界的关注。在日本电子工业协会(JEITA)举办的钎料报告会上，SMIC(Senju Metal Industry Co. Ltd)认为 Sn0.3Ag0.7Cu 和 Sn1.0Ag0.5Cu 将成为第二代无铅钎料。然而，随着 Ag 含量的减少，给 SnAgCu 钎料润湿性、可靠性等也带来了较大影响。Chen 等[11] 研究了 Sn0.3Ag0.7Cu 和 Sn1.0Ag0.5Cu 钎料在不同钎剂条件下的润湿性，发现随着 Ag 含量的降低导致钎料的润湿性下降，且不同的钎剂对低银钎料的润湿性差异较大。Kanlayasiri 等[12]研究发现当 Ag 的含量降低到 0.3%时，钎料的熔点明显增加，固、液相线温度分别为 219.4 和 241.7 ˚C，添加适量 In 元素，显著降低了 Sn0.3Ag0.7Cu 钎料的熔点。

目前，大多数研究者多集中在高银钎料的性能研究，对于低银 Sn0.3Ag0.7Cu 和 Sn1.0Ag0.5Cu 钎料的研究较少。为此，本工作通过对比工业界广泛应用的 Sn3.0Ag0.5Cu 钎料，研究低银 Sn0.3Ag0.7Cu 和 Sn1.0Ag0.5Cu 钎料焊接的组织演化与性能，为后期进一步研究低银钎料提供一定的参考。

1 实验方法

实验材料为日本千住金属工业株式会社生产的 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 钎料焊膏。钎料的熔点测试方法参照日本工业标准 JIS Z 3198[13]进行，采用 STA 449 F3 同步热分析仪(DSC)对钎料的熔点进行测量，将 15 mg 左右的钎料置于 Al_2O_3 坩埚中，测试的温度范围为 25~265 ˚C，升温速率为 5 ˚C/min。对于 3 种不同成分钎料，至少测量 5 组数据。

润湿性的测试选用 25 mm×25 mm×1 mm 的 Cu 板，将(0.2 ±0.01)g 焊膏放入 Cu 板的中心位置进行回流焊(T937 回流焊机)，采用如图 1 所示的回流温度曲线，曲线的峰值温度为 255 ˚C。实验结束后，对样品切面、镶嵌、打磨、抛光后放入 MR2000 金相显微镜下拍照，通过 Image-J 软件进行润湿角的测量。为了研究不同氛围条件下 Sn-Ag-Cu 钎料的润湿性，在回流焊的过程中充入一定量的 N_2 气。

采用 STR-1000 型微焊点强度测试仪对焊后 256 引脚四边扁平封装(quad flat package，QFP256)和片式电阻器件分别进行拉伸和剪切测试。为了保证测量的准确性，选择焊点成型较好的器件进行测试，图 2 为焊点的力学性能测试示意图。测试完成后采用 Quanta 250 型扫描电镜(SEM)对拉伸断口形貌进行观察，分

析焊点的断裂位置。

为了分析焊后及热循环条件下焊点的显微组织，将 3 种不同成分的焊点放入 TL-1000 型高低温循环试验箱进行热循环实验，温度参数为-55~125 ˚C，最高温度和最低温度均保温 15 min，升温和降温的速率为 12 ˚C/min，如图 3 所示。整个热循环实验持续 500 cyc，每 100 cyc 取出一次。使用 95%CH_3CH_2OH+5%HNO_3(体积分数)溶液对样品进行腐蚀，采用 SEM、SEM 附带的能谱仪(EDS)及 D-8 X 射线衍射仪(XRD)观察和分析不同焊点的基体组织和界面层的形貌。

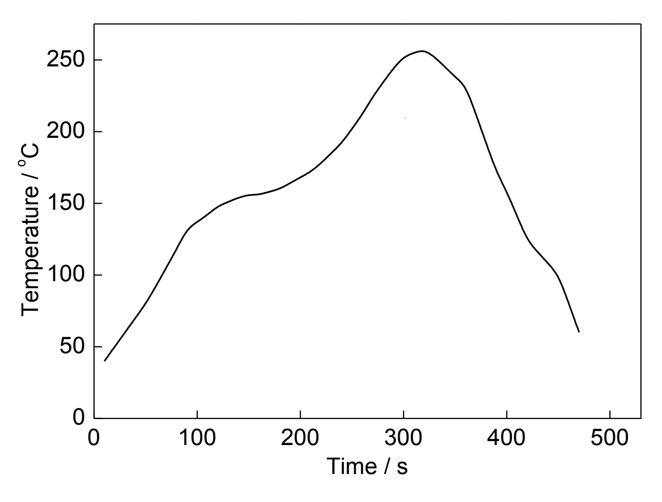


图 1 无铅焊接回流曲线

Fig.1 Reflow soldering curve of lead-free solder

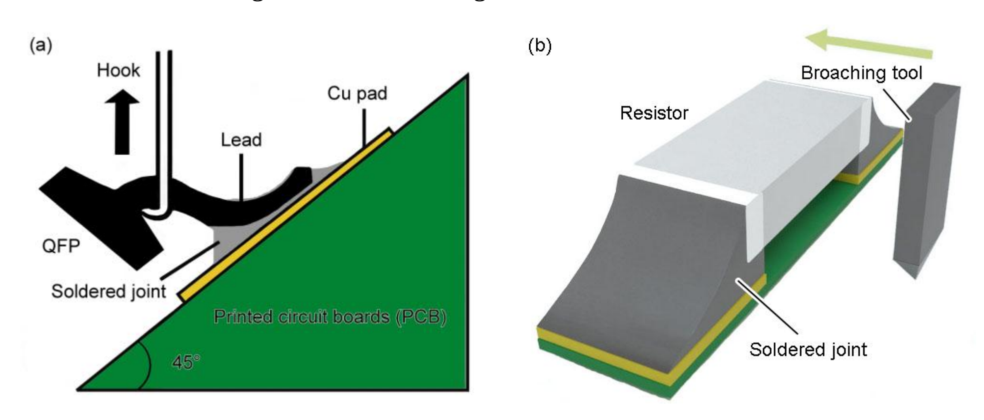


图 2 Sn-Ag-Cu 焊点的力学性能测试示意图

Fig.2 Schematics of pull force of quad flat package (a) and shear test of chip resistor (b)

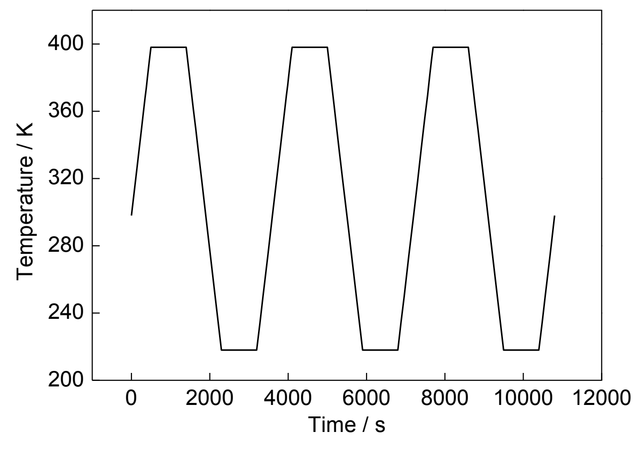


图 3 热循环实验的温度循环载荷曲线

Fig.3 Loading specification of temperature cycle

2 实验结果与讨论

2.1 熔化特性

表 1 为 3 种钎料的熔化特性。可以看出，3 种钎料的固相线差距不大，均在 213 ˚C 左右，但是液相线却有较为明显的差距。Sn0.3Ag0.7Cu 钎料的液相线为 228.1 ˚C，当 Ag 含量为 1.0%时，钎料的液相线为 227.7 ˚C，继续增加 Ag 含量至 3.0%时，钎料的液相线下降到 219.7 ˚C。同时 3 种钎料的熔化温度区间和过冷度也随着 Ag 含量的增加呈现下降的趋势，较小的熔化区间有利于钎焊时液态钎料的流动，提高润湿过程，也减少虚焊现象的产生。尽管 3 种钎料的液相线温度差距较大，但在钎焊过程中，回流焊曲线的峰值温度一般高于钎料熔点的 25~60 ˚C，因此，低银钎料可以适应现有高银钎料的回流曲线。

表 1 Sn-Ag-Cu 钎料的熔化温度

Table 1 Melting temperature of Sn-Ag-Cu solder

(˚C)

Solder	Solidus temperature	Liquidus temperature	Melting range	Undercooling
Sn0.3Ag0.7Cu	213.0	228.1	15.1	22.6
Sn1.0Ag0.5Cu	213.7	227.7	14.0	17.8
Sn3.0Ag0.5Cu	213.4	219.7	6.3	8.3

2.2 润湿性

图 4 为 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 钎料在不同氛围下的润湿角。可以看出，在空气氛围下，当 Ag 含量增加时，钎料的润湿角明显降低。Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 的润湿角分别为 43°、39° 和 30°。这是由于 Ag 含量的增加，降低了钎料的液相线温度，在钎焊温度一定的条件下，钎料的过热温度增大，钎料表面张力减小[14]。因此，当 Ag 含量增加时，钎料的润湿角下降，润湿性能提高。在回流过程中充入一定量的 N_2，发现 3 种钎料的润湿角均低于空气氛围条件下的润湿角。根据 Young 方程[15]：

$$\cos\theta = \frac{\gamma_{gs} - \gamma_{ls}}{\gamma_{gl}} \tag{1}$$

式中，γ_{gs} 为基板表面张力；γ_{ls} 为基板/钎料界面张力；γ_{gl} 为钎料表面张力；θ 为润湿角。由式(1)可知，θ 越小，钎料的润湿性越好，增大 γ_{gs} 或减小 γ_{ls}、γ_{gl} 均可改善钎料的润湿性。在回流过程中，空气氛围下 Cu 基板经钎剂去膜后，表面会重新生成氧化膜，此氧化膜表面张力较小，而在 N_2 氛围下氧的浓度较低，经钎剂去膜的 Cu 基板很难重新生成氧化膜，因此，γ_{gs}(氮气)$_{>>}\gamma_{gs}$(空气)。另外，在 N_2 氛围下钎料的表面张力 γ_{gl} 比在空气氛围下有所下降[16]，因此，在 N_2 氛围条件下导致 $\cos\theta$ 值变大，润湿角 θ 值变小，钎料的润湿性得到提高。

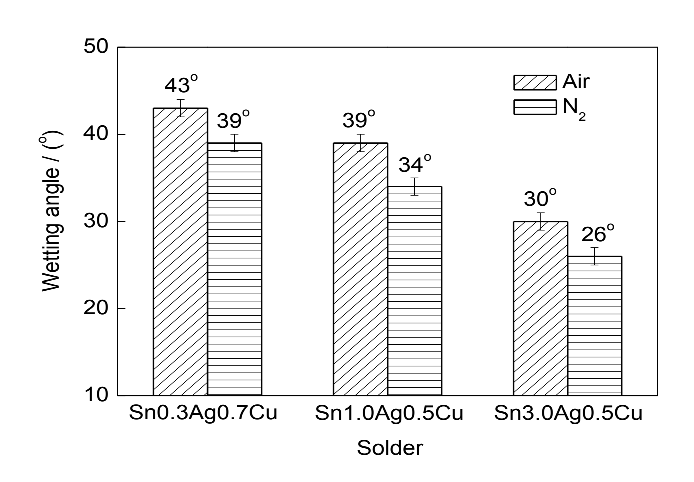


图 4 不同氛围下 Sn-Ag-Cu 钎料的润湿角

Fig.4 Wetting angles of Sn-Ag-Cu solders during different atmospheres

2.3 力学性能

图 5 为 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 钎料焊点的力学性能。可以看出，Sn3.0Ag0.5Cu 焊点的拉伸力高于 Sn0.3Ag0.7Cu 和 Sn1.0Ag0.5Cu，焊点的剪切力也有类似的现象。当 Ag 的含量为 0.3%时，焊点的剪切力为 48 N，随着 Ag 的含量增加到 1.0%时，焊点的剪切力为 54 N，当 Ag 含量为 3.0%时，焊点的剪切力为 57 N，这主要归因于 SnAgCu 焊点显微组织中弥散分布着 Ag_3Sn 和 Cu_6Sn_5 化合物。其中，Ag_3Sn 弥散分布在钎料基体上，使焊点的强度增加[17]。当 Ag 含量增加时会增强其弥散作用，从而提高了焊点的力学性能。

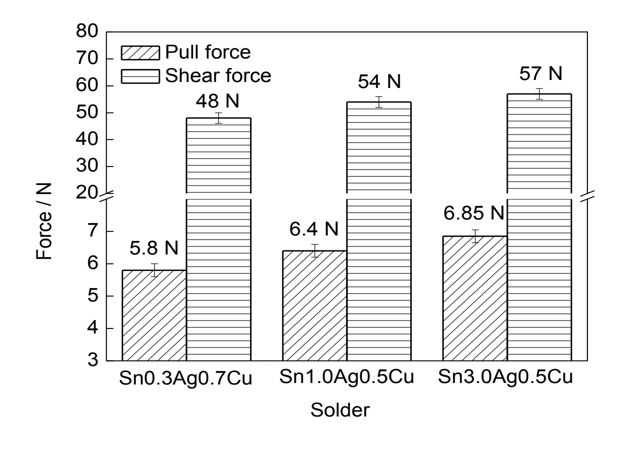
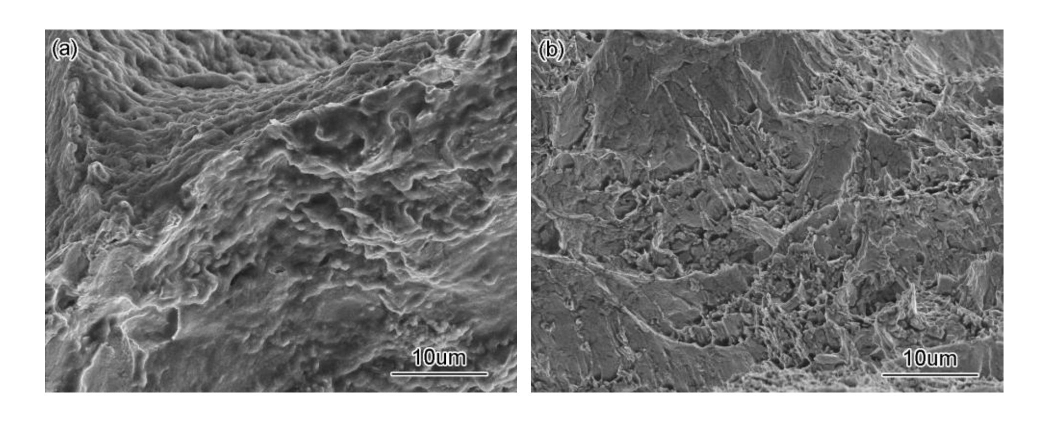


图 5 Sn-Ag-Cu 钎料焊点的力学性能

Fig.5 Mechanical properties of Sn-Ag-Cu solder joints



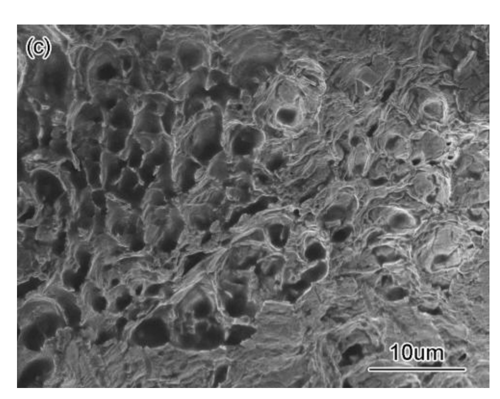


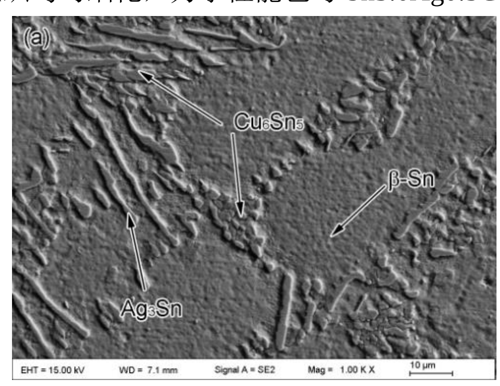
图 6 Sn-Ag-Cu 焊点断口 SEM 像

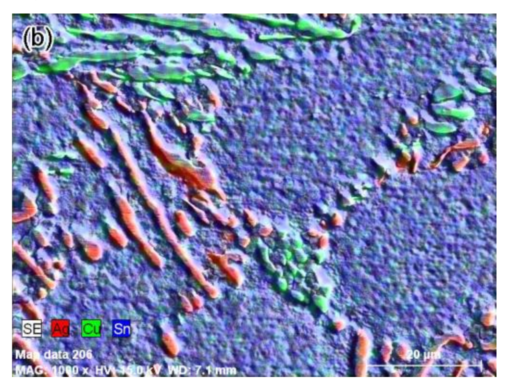
Fig.6 Fracture SEM images of Sn0.3Ag0.7Cu (a), Sn1.0Ag0.5Cu (b) and Sn3.0Ag0.5Cu (a)

图 6 为 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 焊点断口的 SEM 像。可以观察到，在拉伸断裂过程中 3 种焊点的断口组织均出现韧窝形状，属于韧性断裂特征，且随着 Ag 含量的增加，韧窝的尺寸逐渐增大。对断口进行 EDS 分析，发现断口的表层物质为 Sn，说明断裂发生在焊点基体内部。这是由于焊点高度较大(约 500 μm)，在钎焊过程中，熔融钎料与 Cu 基板在爬升过程中易使焊点中间部分出现缩颈，导致焊点中间的尺寸明显变小，因此断裂位置出现在焊点基体内部。Zhang 等[18]研究 SnAgCuCe 焊点可靠性时，也发现在拉伸过程中焊点的断裂位置与焊点高度有关的类似现象。

2.4 焊点基体组织

图 7 为 Sn3.0Ag0.5Cu 焊点基体组织的 SEM 像、面扫描分析和 XRD 谱。可以看出，SnAgCu 焊点的基体组织由 β-Sn 和共晶组织组成，共晶组织包括大量的 Ag_3Sn+Sn 和 Cu_6Sn_5+Sn 混合而成，细小、均匀的组织可以显著提高焊点的力学性能。图 8 为 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 焊点的基体组织。可见，Sn0.3Ag0.7Cu 和 Sn1.0Ag0.5Cu 焊点中存在着少量 Ag_3Sn 和大颗粒 Cu_6Sn_5 化合物，且分布比较杂乱。当 Ag 的含量为 3.0%时，焊点的基体组织相对较为均匀，焊点的共晶组织增大，β-Sn 尺寸减少。这是由于 Sn3.0Ag0.5Cu 钎料离共晶点较近，导致钎料在固溶点快速形核与结晶，焊点凝固后晶粒生长细小致密，力学性能也较高。而低银 Sn0.3Ag0.7Cu 和 Sn1.0Ag0.5Cu 钎料离共晶点较远，钎料在凝固过程中由于过冷度较大，导致最早析出的初晶长时间处于高温下而长成较为粗大的晶粒。因此，为了提早凝固，有研究者通过在低银钎料中添加纳米颗粒[19~22]，通过在钎料凝固过程中纳米颗粒为 β-Sn 的凝固提供形核质点，使钎料的基体组织均匀细化，力学性能也与 Sn3.0Ag0.5Cu 焊点接近。





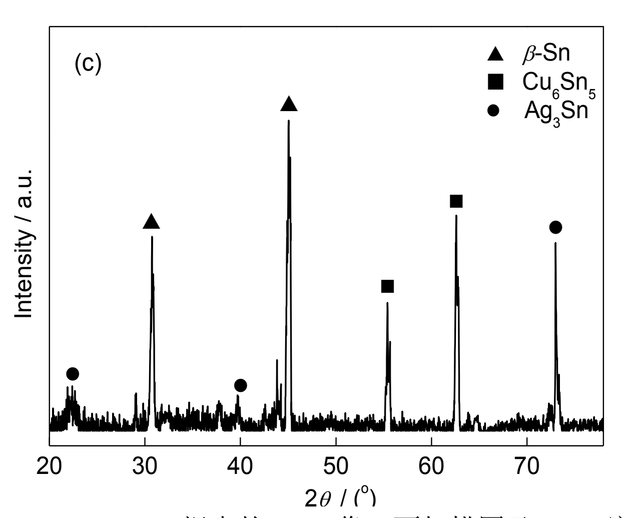


图 7 Sn3.0Ag0.5Cu 焊点的 SEM 像、面扫描图及 XRD 谱

Fig.7 SEM image (a), EDS elemental distribution map (b) and XRD spectrum (c) of Sn3.0Ag0.5Cu solder joint

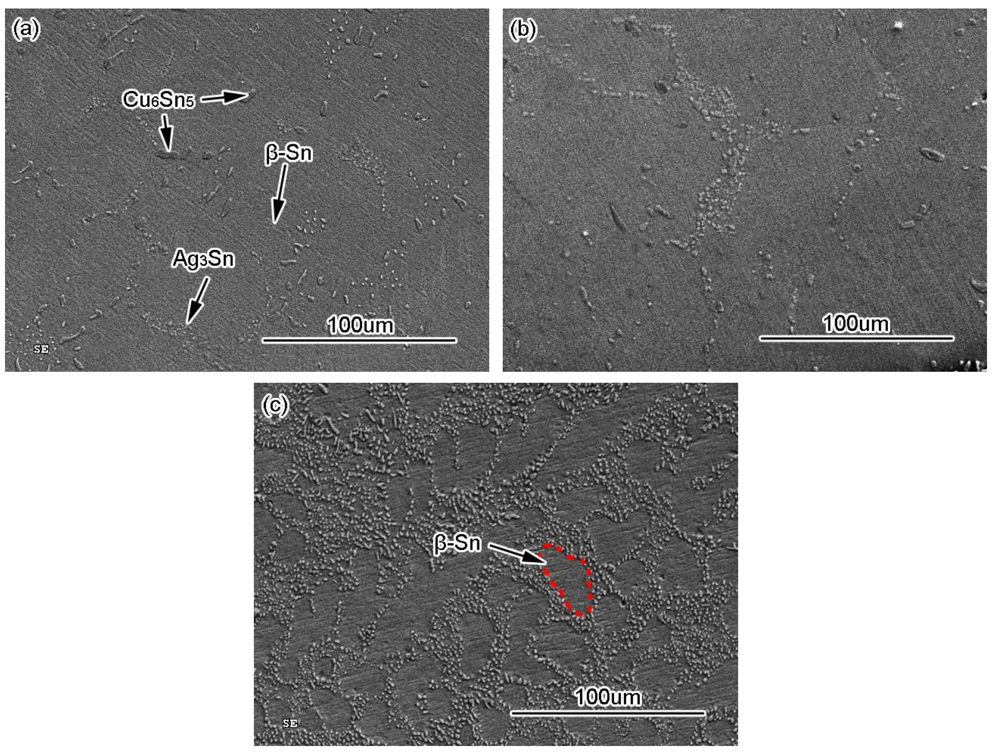


图 8 Sn-Ag-Cu 焊点基体组织的 SEM 像

Fig.8 SEM images of matrix structures of Sn0.3Ag0.7Cu (a), Sn1.0Ag0.5Cu (b) and Sn3.0Ag0.5Cu (c) solder joints

2.5 界面层生长分析

图 9 为 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 钎料焊后界面的 SEM 像。可以看出，3 种钎料的界面层呈现扇贝状形貌，经 EDS 检测，该相为 Cu_6Sn_5。同时，通过对 3 种焊点界面金属间化合物(IMC)层的测量得出 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 钎料的界面层厚度分别为 1.97、2.1 和 2.15 μm。

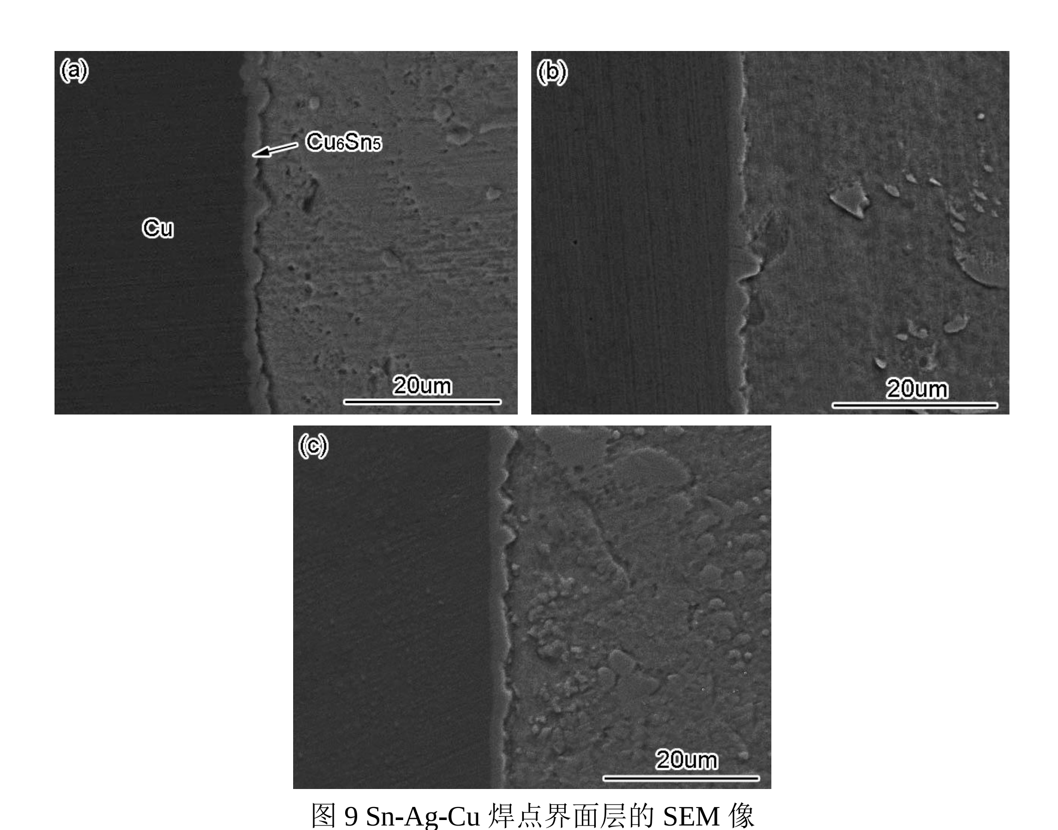
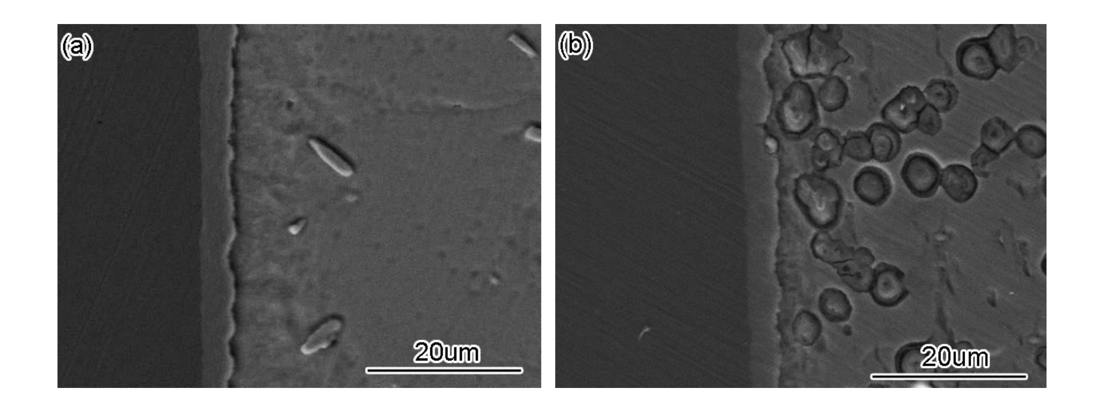


图 9 Sn-Ag-Cu 焊点界面层的 SEM 像

Fig.9 SEM images of interface layers of Sn0.3Ag0.7Cu (a), Sn1.0Ag0.5Cu (b) and Sn3.0Ag0.5Cu (c) solder joints

图 10 为经热循环 500 cyc 后 Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 焊点界面层的形貌。可见，经过热循环处理后，3 种焊点的厚度均显著增加。当热循环次数为 500 cyc 时，Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn3.0Ag0.5Cu 焊点界面 IMC 的厚度分别为 4.1、4.25 和 4.4 μm。说明随着热循环次数的增加，界面层发生 Cu-Sn 元素之间的扩散和反应，从而增加了界面 IMC 层的厚度，且界面 IMC 的形貌也由初始的扇贝状转变为层状。这是由于界面扇贝状 IMC 间的山谷成为元素扩散的通道[23,24]，导致不同的位置扩散速度不同。当大量 Cu 元素在某一山谷扩散时，会使山谷处 IMC 迅速长大。当生长到一定程度后，已形成的较厚金属间化合物阻碍了 Cu 原子进入钎料中，改变了 Cu 在该位置的扩散速率。因此，在 Cu 界面上形成了层状界面 IMC。



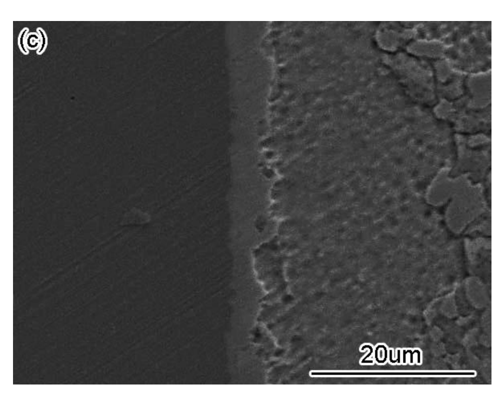


图 10 热循环 500 cyc 后 Sn-Ag-Cu 焊点界面层的 SEM 像

Fig.10 SEM images of interface layers of Sn0.3Ag0.7Cu (a), Sn1.0Ag0.5Cu (b) and Sn3.0Ag0.5Cu (c) solder joints after 500 cycles

为了更好的分析不同 Ag 含量对焊点界面层的影响，可以通过对界面层厚度的变化进行分析，计算不同 Ag 含量的扩散系数。图 11 为界面层厚度与热循环时间的关系图，通过 Origin 软件线性拟合发现界面层厚度与时间的平方根成正比。Zhang 等[25]在研究热循环对 SnAgCu (纳米 La_2O_3)/Cu 焊点界面层的生长行为中也发现类似的现象。因此，可以近似将界面层的厚度与热循环时间表达为：

$$x = x_0 + \sqrt{kt} \tag{2}$$

式中，x 代表 t 时刻界面层的厚度，x_0 为界面层的初始厚度，k 为扩散系数。

利用图 11 的数据分析，得出界面层厚度与热循环时间演化规律方程为：

$$\begin{cases} x_1 = 1.97 + 0.00160\sqrt{t} \\ x_2 = 2.10 + 0.00161\sqrt{t} \\ x_3 = 2.15 + 0.00171\sqrt{t} \end{cases} \tag{3}$$

对式(2)和(3)进一步分析，可以得出 3 种钎料焊点界面层的初始值与 Cu 基板向 Sn 元素扩散系数。可见，当 Ag 含量为 0.3%时，Cu 基板向 Sn 元素扩散系数为 0.0092 $\mu m^2/h$，继续增加到 1.0%时，Cu 基板向 Sn 元素扩散系数为 0.0093 $\mu m^2/h$，当 Ag 含量达到 3.0%时，Cu 基板向 Sn 元素扩散系数为 0.0105 $\mu m^2/h$，表明 Sn3.0Ag0.5Cu 焊点界面层的生长速率高于 Sn1.0Ag0.5Cu 和 Sn0.3Ag0.7Cu。

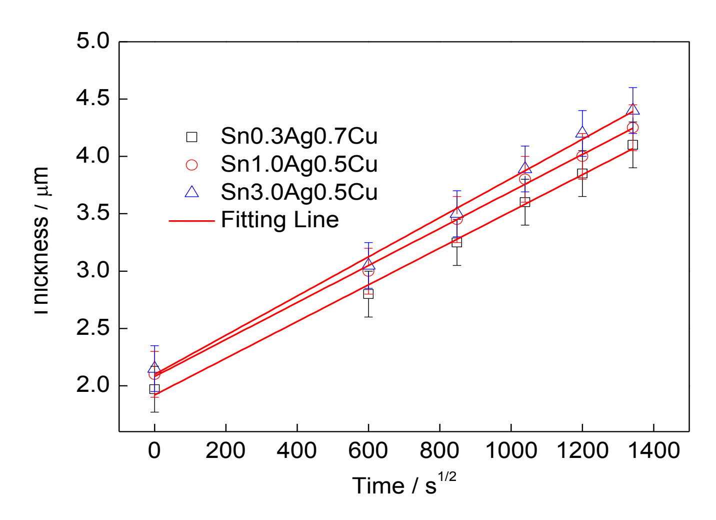


图 11 不同热循环时间下 Sn-Ag-Cu 焊点的界面层厚度

Fig. 11 IMC layer thickness of Sn-Ag-Cu solder joints during different aging time

3 结论

(1)随着 Ag 含量的增加，钎料的熔点变化不大，钎料的润湿角显著降低，焊点的力学性能明显增加。N_2 氛围条件下，3 种钎料的润湿性均出现明显的提高。

(2)Sn0.3Ag0.7Cu、Sn1.0Ag0.5Cu 焊点基体组织存在着少量的 Ag_3Sn 和大颗粒 Cu_6Sn_5，分布杂乱，Sn3.0Ag0.5Cu 焊点的基体组织则相对较为均匀，焊点的共晶组织增大，β-Sn 的尺寸减少。

(3)热循环条件下，3 种焊点的界面层形貌由扇贝状向层状转化，界面 IMC 厚度均明显增加，且界面层厚度与时间的平方根成正比。此外，当 Ag 的含量增加时，焊点界面层的扩散系数也随之增加。

参考文献

[1] Chen X, Zhou J, Xue F, et al. Mechanical deformation behavior and mechanism of Sn-58Bi solder alloys under different temperatures and strain rates [J]. Mater. Sci. Eng., 2016, A662: 251

[2] Xu S, Habib A H, Pickel A D, et al. Magnetic nanoparticle-based solder composites for electronic packaging application [J]. Prog. Mater. Sci., 2015, 67: 95

[3] Jiang Z, Tian Y H, Ding S. Synthesis of Sn3.5Ag0.5Cu nanoparticle solders and soldering mechanism [J]. Acta Metall. Sin., 2016, 52: 105

(江 智，田艳红，丁 苏. Sn3.5Ag0.5Cu 纳米颗粒钎料制备及钎焊机理 [J]. 金属学报, 2016, 52: 105)

[4] Chellvarajoo S, Abdullah M Z. Microstructure and mechanical properties of Pb-free Sn-3.0Ag-0.5Cu solder pastes added with NiO nanoparticles after reflow soldering process [J]. Mater. Des., 2016, 90: 499

[5] Chen X, Zhou J, Xue F, et al. Effect of In on microstructure, thermodynamic characteristic and mechanical properties of Sn-Bi based lead-free solder [J]. J. Alloys Compd., 2015, 633: 377

[6] Chen G, Wu F S, Liu C Q, et al. Microstructures and properties of new Sn-Ag-Cu lead-free solder reinforced with Ni-coated graphene nanosheets [J]. J. Alloys Compd., 2016, 656: 500

[7] Yang M, Ji H J, Wang S, et al. Effects of Ag content on the interfacial reactions between liquid Sn-Ag-Cu solders and Cu substrates during soldering [J]. J. Alloys Compd., 2016, 679: 18

[8] Luo D X, Xue S B, Li Z Q. Effects of Ga addition on microstructure and properties of Sn-0.5Ag-0.7Cu solder [J]. J. Mater. Sci. Mater. Electron., 2014, 25: 3566

[9] Hamada N, Uesugi T, Takigawa Y, et al. Effect of addition of small amount of Zinc on microstructural evolution and thermal shock behavior in low-Ag Sn-Ag-Cu solder joints [J]. Mater. Trans., 2013, 54: 796

[10] Sun L, Zhang L, Xu L, et al. Effect of nano-Al addition on properties and microstructure of low-Ag-content Sn-1Ag-0.5Cu solders [J]. J. Mater. Sci. Mater. Electron., 2016, 27: 7665

[11] Chen F J, Gao F, Zhang J Y, et al.Tensile properties and wettability of SAC0307 and SAC105 low Ag lead-free solder alloys [J]. J. Mater. Sci., 2011, 46: 3424

[12] Kanlayasiri K, Mongkolwongrojn M, Ariga T. Influence of indium addition on characteristics of Sn-0.3Ag-0.7Cu solder alloy [J]. J. Alloys Compd., 2009, 485: 225

[13] Wang C Q, Li M Y, Tian Y H, et al. Review of JIS Z 3198: Test Method for Lead-free Solders [J]. Electron. Process Technol., 2004, 25: 47

(王春青，李明雨，田艳红等. JIS Z 3198 无铅钎料试验方法简介与评述 [J]. 电子工艺技术, 2004, 25: 47)

[14] Cheng Y K, Li L F, Xu G L. Effect of Ag on properties of Sn-0.7Cu-0.2Ni alloy solder [J]. J. Funct. Mater., 2013, 44: 384

(程艳奎，李良锋，徐光亮. 微量 Ag 元素对 Sn-0.7Cu-0.2Ni 钎料性能的影响 [J]. 功能材料, 2013, 44: 384)

[15] Zhang L, Fan X Y, Guo Y H, et al. Properties enhancement of SnAgCu solders containing rare earth Yb [J]. Mater. Des., 2014, 57: 646

[16] Wang J X, Xue S B, Huang X, et al. Effects of N_2 protection on wettability of Sn-Cu-Ni-Ce lead-free solder [J]. Trans. China Weld. Inst., 2007, 28: 49

(王俭辛，薛松柏，黄 翔，等. 氮气保护对 Sn-Cu-Ni-Ce 无铅钎料润湿性的影响 [J]. 焊接学报, 2007, 28: 49)

[17] Ma X L. Research on SnAgCu solder alloys [D]. Beijing: Beijing University of Technology, 2004

(马秀玲. SnAgCu 系无铅钎料的研究 [D]. 北京: 北京工业大学, 2004)

[18] Zhang L, Han J G, Guo Y H,et al. Reliability of SnAgCu/SnAgCuCe solder joints with different heights for electronic packaging [J]. J. Mater. Sci. Mater. Electron., 2015, 25: 4489

[19] Yang L, Ge J G, Zhang Y C, et al. Effect of $BaTiO_3$ on the microstructure and mechanical properties of Sn1.0Ag0.5Cu lead-free solder [J]. J. Mater. Sci. Mater. Electron., 2015, 26: 613

[20] El-Daly A A, Al-Ganainy G S, Fawzy A, et al. Structural characterization and creep resistance of nano-silicon carbide reinforced Sn-1.0Ag-0.5Cu lead-free solder alloy [J]. Mater. Des., 2014, 55: 837

[21] Gu Y, Zhao X C, Li Y, et al. Effect of nano-Fe_2O_3 additions on wettability and interfacial intermetallic growth of low-Ag content Sn-Ag-Cu solders on Cu substrates [J]. J. Alloys Compd., 2015, 627: 39

[22] Wu R W, Tsao L C, Chen R S. Effect of 0.5 wt% nano-TiO_2 addition into low-Ag Sn0.3Ag0.7Cu solder on the intermetallic growth with Cu substrate during isothermal aging [J]. J. Mater. Sci. Mater. Electron., 2015, 26: 1858

[23] Ma L M, Xu G C, Sun J, et al. Electromigration effects on intermetallic compound layer growth in Sn-3.0Ag-0.5Cu-XCo solder joint [J]. Rare Metal Mat. Eng., 2011, 40(suppl.): 438

(马立民，徐广臣，孙 嘉等. Sn-3.0Ag-0.5Cu-XCo 钎焊接头金属间化合物层电迁移现象的研究 [J]. 稀有金属材料与工程, 2011, 40(增刊): 438)

[24] Sun L, Zhang L, Zhong S J, et al. Reliability study of industry Sn3.0Ag0.5Cu/Cu lead-free soldered joints in electronic packaging [J]. J. Mater. Sci. Mater. Electron., 2015, 26: 9164

[25] Zhang L, Gao L L. Interfacial compounds growth of SnAgCu(nano La_2O_3)/Cu solder joints based on experiments and FEM [J]. J. Alloys Compd., 2015, 635: 55